N° de Série

T H E S E S

(version réduite)

présentées

à la FACULTE des SCIENCES de l' UNIVERSITE DE PARIS

pour obtenir

LE GRADE DE DOCTEUR ES SCIENCES PHYSIQUES

par

RAJENDRA LAL BANERJEE

1ère THESE - Contribution à l'étude de l'effet Compton

2ème THESE - Propositions données par la Faculté

soutenues le 26 Mars 1966

MEMBRES DU JURY

MM. J. WYART Président
J. LAVAL)
H. CURIEN) Examinateurs
Ph. NOZIERES)

N° de Série

T H E S E S

(version réduite)

présentées

à la FACULTE des SCIENCES de l' UNIVERSITE DE PARIS

pour obtenir

LE GRADE DE DOCTEUR ES SCIENCES PHYSIQUES

par

RAJENDRA LAL BANERJEE

1ère THESE - Contribution à l'étude de l'effet Compton

2ème THESE - Propositions données par la Faculté

soutenues le 26 Mars 1966

MEMBRES DU JURY

MM. J. WYART — Président
J. LAVAL)
H. CURIEN) Examinateurs
Ph. NOZIERES)

UNIV.
LEIDEN
BIBL.

I - INTRODUCTION

Dans ce travail nous avons étudié la diffusion Compton des rayons -X par des monocristaux de Silicium et de Magnésie. Nous avons également mesuré la diffusion totale des rayons -X par le quartz et la silice vitreuse. Dans une série d'articles (1) (2) et (3) FREEMAN a calculé les intensités de diffusion Compton pour de nombreux types d'atomes à partir de la formule de WALLER et HARTREE, en tenant compte des termes d'échange, qui avaient été négligés dans la plupart des calculs antérieurs, notamment ceux de JAMES et BRINDLEY.

Les résultats de ces calculs, sont en général en bon accord avec les résultats expérimentaux de LAVAL (4) sur KCl, de WALKER (5) sur Al et de CRIBIER (6) sur CaF_2. Mais dans des domaines angulaires situés autour de certaines valeurs de $\sin\theta/\lambda$ l'accord entre les résultats des calculs et des expériences semble être moins bon. Nous nous sommes proposé d'étudier l'éventualité de tels désaccords.

Nous avons d'abord choisi le Silicium comme échantillon d'étude, parce que, même à la température ordinaire la contribution de la diffusion thermique à la diffusion totale mesurée est faible. Celle-ci devient encore plus faible, à la température d'ébullition de l'azote.

Dans nos expériences, nous ne faisons pas l'analyse spectrale des Rayons X diffusés. L'intensité de la diffusion Compton est obtenue en retranchant de l'intensité totale mesurée la contribution ther.

mique calculée. L'erreur inévitable provenant des diverses approximations dans les calculs est moins conséquente quand cette contribution est elle-même faible. Au cours de notre étude sur le Silicium nous avons constaté un désaccord entre nos résultats expérimentaux et ceux des calculs de FREEMAN dans un domaine bien défini de $\mathrm{Sin}\,\theta/\lambda$. Les mesures sur d'autres corps (MgO, quartz et silice vitreuse) nous ont été suggérées par cette première constatation et elles ont été réalisées de manière à vérifier l'interprétation proposée.

Digitized by the Internet Archive
in 2026

https://archive.org/details/IA41546822_0029

II - DIFFUSION DES RAYONS X PAR LE SILICIUM A TEMPERATURE ORDINAIRE

I) - Appareillage :

a) Tube et monochromateur

Toutes nos mesures ont été effectuées avec le rayonnement quasi monochromatique du doublet MoK_α

Le tube à rayons -X est un tube à vide Philips, disposé horizontalement. Il est excité par une tension insuffisante pour donner naissance à l'harmonique 2 ($\lambda = 0,353$ Å).

Le monochromateur est à lame de quartz courbée.

La figure 1 donne le schéma général de l'appareil. A la sortie du monochromateur, une première fente f_1 limite le faisceau en largeur et hauteur. Une deuxième fente f_2 placée à l'endroit où se produit la focalisation ne touche pas les bords du faisceau. Elle a pour but d'arrêter les rayons diffusés par les lèvres de la fente f_1.

La fente f_2 est placée à l'endroit de largeur minimum. Une fente f'_2, placée contre la fente f_2, limite le faisceau en hauteur.

Dans tout ce qui suit, nous appellerons faisceau incident le faisceau partiellement polarisé, issu de cette double fente f_2 f_2'.

b) Porte-cristal et Compteur à scintillation

L'appareil est un spectromètre travaillant par transmission à compteur à scintillation suivi d'un sélecteur à bande ajustable.

Le porte-cristal PC peut être facilement retiré pour permettre les mesures du faisceau incident. Des réglages préliminaires permettent d'amener la face plane du monocristal étudié, fixé sur le porte-cristal, dans un plan vertical passant par C.

Un dispositif de butée rend le porte-cristal solidaire d'un vecteur v donnant, sur un tambour gradué, sa position à la minute sexagésimale près.

Deux fentes fixées devant le compteur définissent les faisceaux diffusés, une fente f_3 limite la hauteur et une autre f_4 limite la largeur.

2) - Principe des mesures

Nos mesures comparent l'intensité du faisceau diffusé dans une certaine direction à l'intensité du faisceau incident. Le rapport de ces deux intensités est de l'ordre de 10^{-7}. Avec notre compteur à scintillation nous ne pouvons pas comparer ces deux intensités directement, car le faisceau incident est trop fort pour être mesuré (maximum du flux mesurable : 30.000 impulsions par min.). Pour mesurer le faisceau incident nous avons utilisé un absorbant qui réduit l'intensité du faisceau L'absorbant constitué par une plaque d'Aluminium de 4 mm d'épaisseur, a été étalonné en mesurant le faisceau direct, fortement réduit par diminution du courant du tube à rayon -X mais en gardant la tension à la même valeur que celle qui est utilisée pour faire la mesure. Le rapport de ces deux mesures avec et sans absorbant (= 7370) a été utilisé comme facteur d'absorption pour la mesure du faisceau direct utilisé dans les expériences ultérieures.

L'intensité du faisceau de rayons -X n'est pas rigoureusement constante dans le temps, mais ses fluctuations sont inférieures à 2%. Nous avons utilisé un moniteur placé perpendiculairement au faisceau incident notant cette fluctuation pendant la mesure du faisceau diffusé afin de détecter une forte variation accidentelle. Nous mesurons l'intensité diffusée par le cristal.

Le rayonnement de fluorescence émis par le silicium est de grande longueur d'onde et il est absorbé par quelques centimètres d'air.

Les monocristaux de silicium utilisés étaient taillés perpendiculairement à l'axe de symétrie ternaire et polis.

3) - Pouvoir diffusant

(voir la figure 2)

Soit Φ_o le flux dans le faisceau incident, que nous supposons tout d'abord parallèle.

Soit "a" l'angle du faisceau incident avec la normale à la face d'entrée du cristal, et "b" l'angle du rayon moyen du faisceau diffusé avec la normale à la face de sortie.

L'angle de diffusion (en tenant compte du sens de mesure indiqué dans la fig. 2) est :

$$2\theta = b + a$$

θ étant compté à partir du faisceau incident.

En arrivant en x le flux $\Phi_o = I_o S$ devient $\Phi_o e^{-\mu x/\cos a}$ où μ est le coefficient d'absorption linéaire pour la radiation Mo K_α .

Soit p l'énergie diffusée rapportée à un électron du cristal. D'après LAVAL (10)

$$p = P_1 \omega$$

où ϖ est la fraction d'énergie qui serait diffusée par un électron libre de Thomson diffusant dans les mêmes conditions.

P_1 est appelé le pouvoir diffusant global, car il se rapporte aussi bien à l'effet Compton qu'à la diffusion thermique.

L'énergie diffusée rapportée à un atome est pz ; un élément du volume dv diffuse donc $pz.\rho.\frac{dv}{m}$, où z est le numéro atomique de l'atome et m est la masse. ρ est la densité du cristal.

L'énergie diffusée par un élément de volume dv à la profondeur x dans un angle solide dw est

$$pz\rho\frac{dv}{m}\quad I_o\quad e^{-\mu x/\cos a}\quad dw$$

A la sortie du cristal, on retrouve :

$$pz\frac{\rho\,dv}{m}\quad e^{-\mu x/\cos a}\ .\ e^{-\mu(h-x)/\cos b}\ .\ I_o\ dw$$

$$=P_1\ z\ \frac{\rho\,dv}{m}\ \varpi\quad I_o\,dw.\ e^{-\mu x\left(\frac{1}{\cos a}-\frac{1}{\cos b}\right)}.\ e^{-\mu h/\cos b}$$

Prenant pour dv, une épaisseur dx et une base $\frac{S}{\cos a}$, on a :

$$P_1 z\rho\,\frac{dx.S}{\cos a}\ .\frac{1}{m}\ \varpi\ dw\ I_o\quad e^{-\mu x\left(\frac{1}{\cos a}-\frac{1}{\cos b}\right)}\ e^{-\mu h/\cos b}$$

Donc, l'énergie diffusée dans dw par tout le volume irradié du cristal est :

$$P_1\ z\ \frac{\rho}{m}\ \Phi_o\ dw\ \frac{1}{\cos a}\ \varpi\ e^{-\frac{\mu h}{\cos b}}\quad \int_0^h e^{-\mu x\left(\frac{1}{\cos a}-\frac{1}{\cos b}\right)}\quad dx$$

Le rapport des intensités des faisceaux diffusé et incident est donc :

$$\frac{i}{I}=P_1\ z\ \frac{\rho}{m}\ dw\ \varpi\ e^{\frac{-\frac{\mu h}{\cos b}}{\cos a}}\quad \int_0^h e^{-\mu x\left(\frac{1}{\cos a}-\frac{1}{\cos b}\right)}\quad dx$$

$$= P_1 \frac{z\rho}{m\mu} \, dw \, \frac{e^{-\mu h/\cos b}}{1 - \frac{\cos a}{\cos b}} \, \omega \left[1 - e^{-\mu h \left(\frac{1}{\cos a} - \frac{1}{\cos b} \right)} \right]$$

Nous posons $\frac{m\mu}{z} = \mu_e$ = coefficient d'absorption par électron.

D'où :

$$\frac{i}{I} = P_1 \frac{1}{\mu_e} \, dw \omega \frac{e^{-\mu h/\cos b}}{1 - \frac{\cos a}{\cos b}} \left[1 - e^{-\mu h \left(\frac{1}{\cos a} - \frac{1}{\cos b} \right)} \right]$$

$$\text{d'où } P_1 = \frac{i}{I} \mu_e \frac{1}{\omega} \cdot \frac{1}{dw} \cdot \left(1 - \frac{\cos a}{\cos b} \right) \Big/ \left[e^{-\mu h/\cos b} - e^{-\mu h/\cos a} \right]$$

Mais dans nos expériences a = b.

L'expression de P_1 devient alors :

$$P_1 = \frac{i}{I} \mu_e \frac{1}{\omega} \frac{1}{dw} \frac{\exp \mu h/\cos b}{\mu h/\cos b}$$

Nous prendrons pour valeur de dw, la valeur de l'angle solide défini par les fentes f_3 et f_4 devant le compteur à scintillation. Si r_h et r_l représentent les distances respectives de la fente en hauteur f_3 d'ouverture 2 h et de la fente en largeur f_4 d'ouverture $2l$ du centre C de la surface du cristal on a :

$$dw = \frac{4 \, hl}{r_h \, r_l}$$

$$\text{Donc : } P_1 = \frac{i}{I} \mu_e \frac{1}{\omega} \cdot \frac{e^{\mu h/\cos a}}{\mu h/\cos a} \cdot \frac{r_h \, r_l}{4 \, hl} \qquad (1)$$

Le faisceau incident issu d'un monochromateur est partiellement polarisé. Si Θ représente l'angle de Bragg qui correspond à la réflexion sur les plans de la lame de quartz du monochromateur, et 2ϕ l'angle de diffusion.

$$\omega = \frac{e^4}{m^2 C^4} \quad \frac{1 + \cos^2 2\theta \cos^2 2\phi}{1 + \cos^2 2\theta}$$

Nous avons mesuré la valeur de μ et trouvé $\mu = 14,2\ cm^{-1}$ (la valeur donnée dans le "International tables for Crystallography" est 15,78). A partir de cette valeur nous avons calculé la valeur de μ_e

$$\mu_e = 1,954 \times 10^{-23}\ cm^2$$

4) - Corrections de divergence

Nos faisceaux tant incidents que diffusés, ne sont pas rigoureusement parallèles. Il en résulte que les nombres qui représentent les rapports mesurés entre l'intensité des faisceaux diffusés et incidents nécessitent une certaine correction dite correction de divergence. Il est possible de faire cette correction par une étude poussée des conditions géométriques dans lesquelles nos mesures ont été effectuées. En considérant tous les couples possibles de rayons incidents et diffusés, on définit un ensemble de pôles de diffusion contenus dans un volume borné qui constitue le domaine de divergence. Chaque mesure correspond à un tel domaine de divergence et non pas à un pôle de diffusion unique.

Les erreurs qu'entraîne l'existence de la divergence sont les suivantes :

i) au voisinage d'un noeud du réseau réciproque la variation rapide de l'intensité du flux diffusé peut conduire à surestimer le pouvoir diffusant. OLMER (7) et CURIEN (8) ont proposé différentes corrections pour déduire dans ce cas le pouvoir diffusant vrai du pouvoir diffusant mesuré.

ii) Une autre conséquence de l'étendue du domaine de divergence est que la contribution des ondes longitudinales et celle des ondes transversales contribuant à la diffusion thermique ne sont pas égales à celles calculées en supposant le domaine de divergence ponctuel.

A l'aide de photographies du faisceau incident à l'intervalle de quelques millimètres nous avons déterminé les divergences horizontale et verticale.

De la connaissance de ces valeurs et de la longueur d'onde de rayons -X utilisés on peut facilement construire les domaines de divergence dans l'espace réciproque pour chaque mesure (7). Le domaine de divergence est très étroit par rapport à la distance entre les pôles de diffusion auxquels les mesures sont faites. D'autre part, les mesures sont faites assez loin des noeuds du réseau réciproque, l'erreur dûe à la divergence peut alors être négligée. Dans nos expériences, la largeur de la section horizontale du domaine de divergence est $\frac{2\beta_o}{\lambda} = 0,738 \times 10^{2}$ A^{-1} et la distance dans l'espace réciproque du noeud le plus proche d'un pôle de diffusion est $14,2 \times 10^{-2}$ A^{-1}. L'intervalle entre deux centres de domaines correspondant à deux mesures consécutives est $9,4 \times 10^{-2}$ A^{-1}.

5) - Précision sur le pouvoir diffusant mesuré

a) L'obtention de mesures précises des intensités diffusées est un problème difficile. La petite ouverture nous a été imposée pour éliminer les effets dûs à une grande divergence des faisceaux. Pour diminuer l'erreur statistique dans la mesure, nous avons compté pendant une longue période (4 heures). Nous mesurons l'intensité du faisceau incident avant et après la mesure de la diffusion par le cristal et nous prenons la valeur moyenne de ces mesures comme valeur pendant la durée de la mesure de diffusion. Or, l'intensité du faisceau incident varie inévitable-

ment et irrégulièrement dans le temps autour d'une valeur moyenne constante. Cette variation est surveillée par le moniteur au cours de la mesure. Les mesures de longue durée permettent de considérer la valeur moyenne mesurée comme étant l'intensité effective du faisceau incident sans faire une grande erreur.

b) Calcul d'erreur statistique sur les mesures.

Dans le calcul d'erreur statistique sur la mesure d'une diffusion faible, comme la nôtre, il faut tenir compte aussi de l'erreur sur la mesure du bruit de fond. Ceci devient d'autant plus important que la quantité :

$$K = \frac{\text{Taux de comptage (de la diffusion + bruit de fond)}}{\text{(Taux de comptage du bruit de fond seul)}}$$

est plus petite. On peut montrer (9) dans le cas où t est la période de comptage pour la mesure de diffusion et aussi pour celle du bruit de fond, n le nombre d'impulsions pour le bruit de fond, que l'écart type correspondant à une valeur de K est donné par :

$$\Delta = \frac{100\,(K+1)^{1/2}}{t^{1/2}\,(\frac{n}{t})^{1/2}\,(K-1)}$$

d'où

$$t = \frac{10^4\,(K+1)}{\Delta^2\,(\frac{n}{t})\,(K-1)^2}$$

Dans la plupart de nos mesures K est l'ordre de 4 et $\frac{n}{t}$, le taux de comptage pour le bruit de fond, est de 4 coups par minute. Pour obtenir un écart type de 2,4% de la mesure, nous devons compter pendant 240 minutes. Mais il n'est pas nécessaire de compter la diffusion et le bruit de fond pendant la même durée du temps. Soit une période de temps

T à notre disposition pour mesurer la diffusion et le bruit de fond. Nous pouvons compter pendant (T-t') pour la diffusion et t' pour le bruit de fond. Dans ce cas on peut montrer qu'une valeur minimum de Δ est obtenue, pour une valeur de t' donnée par la formule :

$$t' = \frac{(K^{1/2} - 1)}{K-1} \quad T$$

c'est-à-dire dans le cas où K = 4, nous pouvons disposer seulement du 1/3 du temps T, pour compter le bruit de fond et 2/3 pour compter la diffusion (+ bruit de fond).

Nous avons pu ainsi obtenir les valeurs de $\frac{i}{I_o}$ avec une erreur maximum de 2,5%. Cette erreur a été encore diminuée par répétition des mesures en chaque point un grand nombre de fois. Le coefficient d'absorption linéaire de chaque échantillon a été mesuré avec une erreur inférieure à 1%. Ainsi nos résultats expérimentaux ne comportent pas d'erreur sensiblement supérieure à 3%.

6) - Résultats expérimentaux sur le silicium

Les positions du porte-cristal et du compteur ont été prises de telle manière que le pôle de diffusion se déplace selon la direction [224] du réseau réciproque depuis la valeur de vecteur de diffusion de $0,37 \times 10^8$ cm^{-1} à $1,040 \times 10^8$ cm^{-1}. Ces résultats sont représentés par la courbe P_{GM} dans la figure (3). Cette courbe de P_{GM} (pouvoir diffusant global mesuré) présente un maximum à $\sin\theta/\lambda = 0,285$ Å^{-1} et un minimum à $\sin\theta/\lambda = 0,344$ Å^{-1}. La raison de cette anomalie pourrait être attribuée a priori à l'une des causes suivantes :

i) à quelque source parasite qui n'est pas au premier abord apparente.

ii) à une variation dans la contribution de l'agitation thermique des atomes.

iii) à une variation dans la contribution de l'effet Compton.

On a d'abord cherché a détecter un défaut éventuel dans la manipulation, qui aurait pu être la cause de l'anomalie constatée. Le montage de l'appareillage a été soigneusement vérifié. Mais les mesures sont toujours restées identiques. Nous n'avons donc pas trouvé de cause extérieure accidentelle pour cette anomalie dans le pouvoir diffusant mesuré.

Nous avons photographié la diffusion sur un film extra sensible (Cherry x-ray film, Konishiroku photo, Co., Japon), le cristal étant dans une position où l'anomalie se manifeste. Après un temps de pose de 5 heures, sur la photographie apparurent deux taches de réflexion assez intense correspondant aux noeuds de réseau réciproque 202 et 022.

Sur la figure 4 on voit les positions des pôles de diffusion P_1 et P_2 correspondant aux maximum et minimum de la diffusion sur le plan réciproque (111). Le pôle de diffusion se déplace suivant la direction $[\bar{2}2\bar{4}]$. On pouvait se demander si l'anomalie constatée sur la courbe P_{gm} pouvait être dûe à la diffusion supplémentaire provenant des réflexions sélectives correspondant à ces deux noeuds 202 et 022. Cela serait possible si la zone de diffusion autour de ces noeuds était suffisamment étendue pour qu'une partie de cette zone soit touchée par le domaine de divergence autour de notre pôle de diffusion. Le cristal fut alors orienté de façon à réaliser des photométries pour les points P'_1 et P'_2. Aucun changement remarquable n'a été observé dans l'allure de la courbe P_{gm}.

Nous avons ensuite calculé le pouvoir diffusant thermique du premier ordre pour les vecteurs de diffusion X parallèles à la direction $[2\bar{2}4]$ du réseau réciproque, pour séparer les contributions de l'effet Compton de celle de l'agitation thermique.

7) - Calcul du pouvoir diffusant du premier ordre

a) Rappel de dynamique cristalline

Pour un cristal comportant N atomes, l'agitation thermique peut être résolue en 3N oscillations harmoniques progressives. Pour connaître la fréquence de ces oscillations, il faut faire appel aux données de la dynamique du milieu cristallin dont l'étude a été faite en particulier par BORN (11).

La position d'un atome sera définie par la somme de trois translations :

$$\vec{m} + \vec{j} + \vec{a}_j^m$$

La première $\vec{m}$ est une translation du réseau cristallin ; la seconde $\vec{j}$ est inscrite dans la maille ; la troisième $\vec{a}_j^m$ exprime le déplacement de l'atome à partir de sa position $\vec{m} + \vec{j}$. Pour simplifier nous appellerons atome mj l'atome dont la position moyenne se trouve à l'extrêmité du vecteur $\vec{m} + \vec{j}$.

En accomplissant un déplacement a_k^p à partir de sa position moyenne un atome pk exerce sur un atome mj lui même affecté du déplacement a_j^m, une force de rappel de composantes :

$$F_{j\alpha}^{m} = \sum_{pk\beta}{}' C_{\substack{j\ k \\ \alpha\ \beta}}^{m-p}\ a_{k\beta}^{p} \qquad \alpha, \beta = 1, 2, 3$$

Le principe fondamental de la dynamique appliqué à l'atome mj permet d'écrire les équations du mouvement :

$$(a) \qquad \mu_j\, \ddot{a}_{j\alpha}^{m} + \sum_{pk\beta} C_{\substack{j\ k \\ \alpha\ \beta}}^{m-p}\ a_{k\beta}^{p} = 0$$

μ_j étant la masse de l'atome mj. Pour un cristal de N atomes on a ainsi 3N équations.

Pour obtenir des solutions sous forme d'ondes harmoniques planes, posons :

$$(2) \qquad a_{j\alpha}^{m} = \frac{\zeta_{\alpha}^{j}}{\sqrt{\mu_j}} \; e^{i2\pi \left[\nu t - \vec{S}\left(\vec{m} + \vec{j}\right)\right]}$$

ζ_{α}^{j} est le vecteur caractérisant l'oscillation accomplie par l'atome j.

$\vec{S}$ est le vecteur d'onde.

En portant dans l'équation (a) on obtient :

$$(3) \qquad \omega^2 \zeta_{\alpha}^{j} + \sum_{k\beta} \gamma_{\alpha\beta}^{jk} \zeta_{\beta}^{k} = 0$$

où $\omega = 2\pi\nu$

et (4) $$\gamma_{\alpha\beta}^{jk} = \sum_{b} C_{jk\,\alpha\beta}^{b} \Big/ \sqrt{\mu_j \mu_k} \; e^{i\,2\pi\,\vec{S}\left(\vec{b} + \vec{j} - \vec{k}\right)}$$

où $\vec{b} = \vec{m} - \vec{p}$

Les termes $\gamma_{\alpha\beta}^{jk}$ sont les éléments d'une matrice hermitienne d'ordre 3g x 3g, dite "matrice de Fourier", g est le nombre d'atomes par maille élémentaire.

Les équations (3) ne sont pas compatibles que si l'on a

$$(5) \qquad \text{Det.} \left[\omega^2 I + \Gamma\right] = 0$$

où I désigne la matrice unité d'ordre 3g x 3g, et Γ la matrice de Fourier.

L'équation (5) définit 3g fréquences par vecteur d'onde $\vec{S}$. Sur ces 3g oscillations, 3 sont du genre "acoustique", c'est-à-dire que leurs fréquences tendent vers zéro quand le vecteur d'onde tend vers zéro, et 3(g-1) sont du genre "optique", leurs fréquences tendent vers des va-

leurs non nulles quand le vecteur d'onde tend vers zéro.

b) Application au silicium

Le réseau cristallin du silicium est du type diamant, la forme de la matrice correspondant à cette structure a été déterminée par SMITH (12). La forme générale de la matrice de Fourier dans ce cas est :

$$\Gamma(S) = \begin{bmatrix} F & J & K & A & B & C \\ J & G & L & B & A & E \\ K & L & H & C & E & A \\ A & B & C & F & J & K \\ B & A & E & J & G & L \\ C & E & A & K & L & H \end{bmatrix} \qquad (6)$$

où

$$F = 4\left[\alpha + \mu\left\{2 - \cos(\pi S_x)\cos(\pi S_y) - \cos(\pi S_z)\cos(\pi S_x)\right\}\right]$$

$$J = 4\mu \sin(\pi S_x)\sin(\pi S_y)$$

$$K = 4\mu \sin(\pi S_z)\sin(\pi S_x)$$

$$L = 4\mu \sin(\pi S_y)\sin(\pi S_z)$$

$$G = 4\left[\alpha + \mu\left\{2 - \cos(\pi S_y)\cos(\pi S_z) - \cos(\pi S_x)\cos(\pi S_y)\right\}\right]$$

$$A = -\alpha\left[1 + e^{-\pi i (S_x - S_y)} + e^{-\pi i (S_z + S_x)} + e^{-\pi i (S_y + S_z)}\right]$$

$$B = -\beta\left[1 + e^{-\pi i (S_x - S_y)} - e^{-\pi i (S_z + S_x)} - e^{-\pi i (S_y + S_z)}\right]$$

$$C = -\beta\left[1 - e^{-\pi i (S_x + S_y)} + e^{-\pi i (S_z + S_x)} - e^{-\pi i (S_y + S_z)}\right]$$

$$E = -\beta\left[1 - e^{-\pi i (S_x + S_y)} - e^{-\pi i (S_z + S_x)} + e^{-\pi i (S_y + S_z)}\right]$$

$$H = 4\left[\alpha + \mu\left\{2 - \cos(\pi S_z)\cos(\pi S_x) - \cos(\pi S_y)\,.\,\cos(\pi S_z)\right\}\right]$$

Cette forme de la matrice de Fourier est obtenue en tenant compte des forces de rappel caractérisées par les constantes α et β entre un atome et ses premiers voisins et celles entre un atome et ses deuxièmes voisins sous l'hypothèse que celles-ci soient centrales, caractérisées par la constante μ.

Dans les équations (7) S_x, S_y et S_z sont des composantes du vecteur d'onde $\vec{S}$.

Malgré l'hypothèse, sous laquelle nous considérons les forces de rappel entre un atome et ses deuxièmes voisins, l'équation (5) pour notre matrice de Fourier n'a pas de solution générale simple. Elle doit être résolue numériquement. Mais, pour certaines directions du vecteur d'onde qui sont parallèles aux axes de symétrie du cristal, le déterminant se décompose en plusieurs déterminants d'ordre inférieur.

Pour faciliter le calcul nous avons divisé les intervalles de valeur des composantes S_x, S_y et S_z du vecteur d'onde $\vec{S}$, dans la région utile qui est la première zone de Brillouin, en huitièmes :

$$S_i = \frac{p_i}{8}$$

où $i = x, y, z$, et p_x, p_y, p_z sont des nombres entiers de 0 à 8.

Nous avons fait les mesures pour les vecteurs de diffusions X parallèles à la direction $[22\bar{4}]$ du réseau réciproque pour éviter des réflexions sélectives. Donc, nous avons besoin de résoudre l'équation (5) pour les vecteurs d'ondes parallèles à cette direction : direction pour laquelle $p_x = p_y$ et p_z double de p_x. Mais pour cette direction le déterminant ne se décompose pas comme dans les direction parallèles aux axes de symétrie. Mais la matrice de Fourier se simplifie cependant un peu

pour cette direction nous avons :

$$C = E,\ F = G \quad \text{et} \quad K = L$$

Les constantes de force de rappel sont calculées à partir des constantes élastiques mesurées à 273°K (13) :

$$C_{11} = 1,674 \times 10^{12} \text{ dynes/cm}^2$$

$$C_{12} = 0,652 \quad " \quad "$$

$$C_{44} = 0,796 \quad " \quad "$$

et la fréquence d'oscillation principale du silicium ($\nu_o = 15,3 \times 10^{12}$ sec^{-1}) déterminée par la méthode de diffusion des neutrons par BROCKHOUSE (14).

Elles sont :

$$\alpha = 5,058 \times 10^4 \text{ dynes cm}^{-1}$$

$$\beta = 3,622 \quad " \quad "$$

$$\mu = 0,199 \quad " \quad "$$

A partir des équations (5) nous avons calculé, à l'aide d'un ordinateur électronique, les courbes de dispersion des fréquences des ondes élastiques dans le cristal pour les vecteurs d'ondes parallèles à $[22\bar{4}]$, la figure 5. A partir de ces valeurs des fréquences et des vecteurs propres de la matrice de Fourier (6) nous avons évalué le pouvoir diffusant thermique de premier ordre.

c) Expression du pouvoir diffusant du premier ordre, P_1

Pour la direction $[22\bar{4}]$ du réseau réciproque l'évaluation du pouvoir diffusant thermique est compliquée du fait que les oscillations harmoniques pilotées par les vecteurs d'onde suivant cette direction ne peuvent pas être séparées en parties purement longitudinales et transversales. Mais la formule développée par LAVAL (15) permet d'évaluer ce pouvoir à partir des fréquences de ces oscillations et des vecteurs propres complexes de la matrice de Fourier (6)

$$P_1 = \frac{|\vec{X}|^2}{\mathcal{E}\mu} \sum_{\nu=1}^{6} \left(\frac{W}{\nu^2}\right)_{S_\nu} \left| \Phi_{S_\nu} \right|^2 \qquad (8)$$

où

$$\Phi_{S_\nu} = \sum_j f'_j \chi^j_{S_\nu} \exp. \, i\,2\pi \left(\vec{M}\vec{J} + \varphi^j_{S_\nu} \right)$$

$$\chi^j_{S_\nu} = \frac{1}{|\vec{X}|} \left(\frac{\mu}{\mu_j}\right)^{1/2} \left| \sum_\alpha X_\alpha \rho^j_{S_\nu \alpha} \exp. \, i\,2\pi \varphi^j_{S_\nu \alpha} \right|$$

$\alpha = 1, 2, 3$

$$\zeta^j_{S_\nu \alpha} = \rho^j_{S_\nu \alpha} \exp. - i\,2\pi \left(\vec{S}\vec{J} - \varphi^j_{S_\nu \alpha} \right)$$

Les $\zeta^j_{S_\nu \alpha}$ sont les composantes des vecteurs propres normés de la matrice de Fourier.

L'indice S_ν rappelle qu'il s'agit de vecteur d'onde $\vec{S}$ et des fréquences ν (= 1, 2, ... 3 g).

f'_j est le facteur de la structure atomique multiplié par le facteur de Debye-Waller.

$$f'_j = f_j \cdot \overline{H}_j$$

$\overline{H}_j$ représente le facteur de Debye-Waller

$(W)_{S_\nu}$ est l'énergie correspondant à l'oscillation de fréquence ν pilotée par le vecteur d'onde $\vec{S}$.

Nous avons assigné à cette énergie la valeur moyenne de $4{,}00 \times 10^{-14}$ ergs.

ν_{S_ν} : fréquence de l'oscillation S_ν

$\mathcal{E}$; nombre d'électrons dans une maille

μ_j : masse de l'atome j

Les facteurs de Debye-Waller ont été calculés d'après les données

des tables internationales de cristallographie et les facteurs de structure atomique sont ceux calculés par FREEMANN (25).

μ : Masse du motif cristallin
$\vec{X}$: Vecteur de diffusion

Les résultats des calculs du pouvoir diffusant thermique du premier ordre sont représentés par la courbe P_1 dans la figure 3.

8 - Pouvoir diffusant dû à l'effet Compton

a) L'effet Compton consiste en un transport d'énergie d'un photon à un électron (dit de recul) qui est éjecté hors d'un atome ; la diffusion des rayons-X par cet effet peut être calculée par la méthode simplifiée de WALLER et HARTREE pour un atome libre de nombre atomique Z à partir de la formule :

$I = Z - \sum_{ij} |f_{ij}|^2$ où nous avons négligé le facteur de BREIT-DIRAC $(\nu'/\nu)^3$ dans lequel ν et ν' sont les fréquences des rayons X avant et après la diffusion.

$$f_{ij} = \int \psi_i^* (r) \exp. i 2\pi (\vec{X} . \vec{r}) \psi_j (r) \, dv.$$

ψ étant les fonctions d'onde pour un électron.

La plupart des calculs de diffusion par effet Compton négligent les termes d'échange ($i \neq j$) dans l'expression de l'intensité diffusée qui est ainsi surestimée. FREEMAN (1) a repris ces calculs, en tenant compte des termes d'échange, ce qui modifie de façon notable les résultats.

Pour le silicium, on a :

$$P_c = 1 - \sum_{ij} |f_{ij}|^2 / 14 \qquad (9)$$

Les résultats du calcul de P_c à partir des données de FREEMAN sont représentés par la courbe marquée P_c dans la figure 3.

b) Résultats expérimentaux

Nous avons obtenu les valeurs expérimentales du pouvoir diffusant par effet Compton par différence entre pouvoir diffusant global mesuré P_{gm} et le pouvoir diffusant thermique du premier ordre P_1 calculé. Ces résultats sont comparés avec les valeurs calculées par FREEMAN dans la figure 3 (voir aussi (24)).

9 - Analyse des résultats expérimentaux

La figure 3 montre qu'il y a un défaut de diffusion pour $\sin \theta/\lambda = 0,34$, par rapport à la courbe théorique.

Pour expliquer ce minimum dans la diffusion mesurée, on pouvait évoquer diverses hypothèses. On aurait pu penser, par exemple, qu'une partie de l'énergie pouvait être prélevée sur le faisceau incident par une réflexion sélective de Bragg, pour l'orientation du cristal, correspondant à la mesure du minimum de la diffusion.

On a donc orienté le cristal de façon à satisfaire exactement la condition de Bragg pour certaines réflexions, et mesuré la diffusion pour la position angulaire qui donne le minimum d'effet Compton. Aucune modification de l'allure de la courbe de diffusion n'a pu être observée. En fait, on a remarqué que le phénomène persiste pour toutes les orientations du cristal, l'angle de diffusion étant maintenu fixe. Cette expérience a été répétée un grand nombre de fois sur différents cristaux de sili-

cium.

Le phénomène n'est donc pas lié directement à l'orientation cristalline. Il a un caractère atomique plutôt que cristallin. La partie de la diffusion en dehors des réflexions de Bragg qui dépend directement des propriétés cristallines est celle qui est due à l'agitation thermique. Celle-ci devient très petite aux basses températures. Donc, pour vérifier une fois de plus que l'anomalie constatée dans la diffusion globale n'est pas dûe à une anomalie dans la partie cohérente de la diffusion, nous avons décidé de mesurer la diffusion à basse température. Les pouvoirs diffusants thermiques (premier ordre) calculés pour les températures d'ébullition de l'azote et de l'hélium dans le domaine du réseau réciproque où se trouve l'anomalie ne sont pas sensiblement différents (fig. 7). Donc, nous avons fait la mesure seulement à la température d'ébullition de l'azote.

III - DIFFUSION DES RAYONS X PAR LE SILICIUM A BASSE TEMPERATURE

Dispositif de refroidissement

Pour refroidir le cristal, nous disposions d'un cryostat produit par "Superior Air products" et ayant subi quelques transformations (fig. 6). Je remercie le Professeur LAVAL et Mademoiselle J. CORBEAU qui ont bien voulu mettre cet appareillage à ma disposition. Le cristal dont la face taillée parallèlement au plan réticulaire (111) du silicium est verticale et passe par l'axe du spectromètre, est maintenu en contact thermique étroit avec l'azote liquide contenu dans l'enceinte intérieure du cryostat ; il est entouré de deux écrans thermiques, à la même température. Le tout est à l'intérieur d'une enceinte dans laquelle on a fait le vide, ce qui supprime les pertes par convections et évite les diffusions parasites. Les fenêtres qui permettent le passage des rayons X sont en aluminium.

Méthode expérimentale

La méthode de mesure est la même qu'à la température ambiante : on compare, à l'aide d'un récepteur, l'intensité diffusée par le cristal dans une direction déterminée, à l'intensité du faisceau incident.

Le tube de rayons -X est un tube scellé à anticathode de molybdène dont on utilise les radiations K celles-ci étant isolées à l'aide d'un monochromateur à lame de quartz courbée.

Précision sur la mesure du pouvoir diffusant

Pour chaque direction le nombre de coups comptés pendant 20

minutes est de l'ordre de 2 000. Donc, considérant aussi l'erreur dans l'étalonnage de l'absorbant, qui a été utilisé pour réduire l'intensité du faisceau incident pour faciliter sa mesure, l'erreur probable sur le pouvoir diffusant mesuré est d'environ 5%.

La figure 7 représente les résultats d'études à la température d'ébullition de l'azote. On peut remarquer que ces résultats sont tout à fait comparables aux résultats obtenus à la température ordinaire.

IV - VOIES D'INTERPRETATION THEORIQUE ET EXPERIENCES COMPLEMENTAIRES

1 - Essai d'interprétation de l'anomalie d'effet Compton

Les résultats expérimentaux montrent donc clairement que l'anomalie constatée est une anomalie dans la diffusion Compton. On peut remarquer d'autre part que pour la valeur de $\sin\theta/\lambda = 0,34$, l'énergie cédée par les photons -X aux électrons Compton est voisine de l'énergie d'émission de la raie -L du silicium. On peut donc penser à une correspondance entre l'anomalie observée et l'émission caractéristique de l'atome.

NOZIERES et PINES (16) ont développé une théorie de l'effet Compton, dans l'approximation de la phase aléatoire. B. ROULET (Laboratoire de Physique, Ecole Normale Supérieure, Paris), sous la direction de Ph. NOZIERES, procède actuellement à des recherches théoriques détaillées dans ce domaine. Il semble actuellement acquis, que lorsque l'énergie cédée à l'électron de recul est une énergie de transition interatomique, le spectre de diffusion Compton s'étale largement en longueur d'onde.

En conséquence, même si la valeur globale de la diffusion Compton ne subit pas d'anomalies, une partie de l'énergie diffusée est alors déplacée vers les grandes longueurs d'ondes et l'auto absorption par échantillon pourrait à elle seule justifier la diminution constatée expérimentalement dans l'intensité globale mesurée.

Si cette interprétation, au moins qualitative, de l'anomalie constatée dans le silicium pour la diffusion Compton est correcte, nous pou-

vons tenter de généraliser aux autres éléments. Chaque fois que l'énergie cédée par les photons incidents est voisine de l'énergie d'émission d'une raie caractéristique de l'atome considéré, on pourrait ainsi attendre une anomalie dans la diffusion Compton.

L'expression de cette énergie est donnée par :

$$E = h\nu \quad \frac{\alpha \text{ vers } \varphi}{1 + \alpha \text{ vers } \varphi} \qquad (10)$$

où, vers $\varphi = 1 - \cos\varphi$

$\alpha = \frac{h\nu}{cm^2}$ (ν étant la fréquence de photon incident et m la masse d'un électron)

et $\varphi = 2\theta$, est l'angle de diffusion.

Cette expression est obtenue en supposant les électrons initialement en repos, par conséquent la valeur de l'énergie ainsi obtenue n'est qu'approximative.

Pour une valeur donnée de l'énergie cédée par les photons aux électrons Compton, on peut calculer l'angle de la diffusion φ ($=2\theta$) correspondant, à partir de la formule (10). De cette façon nous avons tracé une courbe (fig. 8) dont l'abscisse donne les valeurs de la longueur d'onde de la raie -L (en angstrom) pour les différents éléments et l'ordonnée donne les valeurs de $\sin\theta/\lambda$ correspondant aux angles de diffusion.

On peut tracer des courbes semblables pour les autres raies ractéristiques des éléments. A l'aide de ces courbes on peut prédire, pour un élément donné, à quels angles de diffusion on doit attendre une anomalie d'effet Compton. En raison de l'approximation dans l'expression (10) les valeurs d'angle ainsi obtenues ne seront qu'approchées.

Les problèmes pratiques, et en particulier de la précision de mesure, imposent en fait certaines limitations dans le choix des substances à étudier.

Aux éléments pour lesquels l'énergie d'émission de la raie caractéristique est faible doit correspondre une anomalie aux petits angles. Mais notre appareillage ne nous permet pas de faire des mesures au-dessous d'une certaine limite, de l'ordre de 15°, vers les petits angles avec suffisamment de précision ; cela est dû aux diffusions parasites par l'air provenant du faisceau direct. Cette limitation de la mesure aux petits angles impose une limitation sur le choix des échantillons composés d'atomes légers, pour lesquels l'énergie d'émission des raies caractéristiques est faible (plus cette énergie est faible plus l'angle où se trouve l'anomalie correspondante est petit). A cause de cette limitation, nous sommes contraints, avec notre appareil, de nous intéresser aux éléments à partir du numéro atomique 11 (sodium) au minimum. La recherche de cette anomalie aux petits angles est d'autant plus difficile que la contribution dans la diffusion totale de la diffusion Compton est plus petite aux petits angles.

Il n'y a pas de difficultés expérimentales très apparentes pour la recherche de l'anomalie d'effet Compton aux grands angles. Au contraire il y a une circonstance heureuse, aux grands angles, la contribution de la diffusion Compton à la diffusion totale est élevée et celle de l'agitation thermique est diminuée. Mais à cet avantage s'opposent cependant les désavantages suivants :

a) Même si la contribution de l'agitation thermique est petite aux grands angles, son évaluation théorique par la méthode de LAVAL (15) est plus compliquée, car dans ce cas, il n'est plus possible de représenter la contribution de l'agitation thermique uniquement par le pouvoir

diffusant de premier ordre, comme nous l'avons fait pour notre étude sur le silicium. Dans le cas du silicium, dans le domaine angulaire où nous avons fait la mesure, le pouvoir diffusant de deuxième ordre (à température ambiante) est toujours inférieur à 5 % de celui du premier ordre (voir (17)).

b) L'observation aux grands angles implique l'étude du phénomène pour les atomes lourds. Mais, pratiquement, les atomes lourds sont trop absorbants pour que l'étude puisse être faite. Car, pour constater cette anomalie nous devons faire la mesure avec une précision assez élevée, ce qui exige d'avoir une intensité de diffusion assez forte et qui est difficile avec un échantillon contenant des atomes lourds.

Ceci impose, en fait, une limitation au choix des échantillons contenant des atomes lourds. Le choix des substances est donc relativement restreint.

2) Etude expérimentale du quartz et de la silice vitreuse

Nous avons dit, à propos de l'analyse des résultats dans la section précédente, que l'anomalie constatée a certainement une origine atomique. Pour confirmer cette proposition, nous avons décidé de comparer des mesures des pouvoirs diffusants globaux moyens par un cristal de quartz et un échantillon de silice vitreuse. Le but de ces mesures est de voir si l'anomalie constatée dans le cas du silicium se manifeste aussi dans les pouvoirs diffusants globaux moyens d'un composé pour la même valeur de $\sin \theta/\lambda$. Si l'anomalie a un caractère atomique, la réponse doit être positive, à moins que le phénomène ne soit masqué par la partie cohérente de la diffusion.

Cette idée est suggérée d'ailleurs par une légère anomalie observable dans la courbe de l'intensité de diffusion de silice vitreuse pu-

bliée par WARREN (18). Cette anomalie se trouve à la valeur $\sin\theta/\lambda \simeq$ 0,34, à laquelle nous avons constaté une anomalie dans notre étude du silicium. Le principe des mesures est le même que celui que nous avons employé pour le silicium. Cette fois nous avons fait la mesure de $\frac{i}{I_o}$ suivant plusieurs directions du réseau réciproque du quartz. Les résultats reportés sur la figure 9 correspondent à des mesures effectuées pour les vecteurs de diffusion X parallèles à la direction [112] du réseau réciproque. La raison du choix de cette direction est que dans le domaine de valeurs de $\sin\theta/\lambda$ pour lesquelles nous avons fait la mesure, le pôle de diffusion selon cette direction ne s'approche sensiblement d'aucun noeud du réseau réciproque ; ainsi on a pu éviter les réflexions sélectives de Bragg, qui pouvaient éventuellement masquer l'accident cherché dans la diffusion. Mais dans toutes les directions, où nous n'avons pas été gênés par des réflexions sélectives de Bragg nous avons trouvé la même allure pour la courbe de diffusion.

Les mesures faites sur la silice vitreuse sont également reportées sur la figure 9. Elles sont faites par transmission, les échantillons étant des plaquettes d'environ un millimètre d'épaisseur. Sur la figure nous avons tracé aussi la courbe des pouvoirs diffusants dûs à l'effet Compton dans SiO_2 calculé avec les données de FREEMAN (5). On peut remarquer pour le quartz que, au voisinage de la valeur de $\sin\theta/\lambda = 0,36$, il y a un minimum de diffusion correspondant à l'accident observé pour le silicium.

Ce minimum se retrouve aussi dans la courbe relative à la silice vitreuse (bien que, dans ce cas, on puisse évidemment lui attribuer une autre origine).

3) Etude de la diffusion des rayons X par MgO

La structure du MgO est identique à celle de NaCl. Ce dernier a été étudié par MERIEL (19) qui a donné la forme de la matrice de Fourier pour le vecteur d'onde parallèle à $[110]$, en tenant compte des forces de rappel entre un atome et ses premier, deuxième et troisième voisins ; celles entre les deuxième et troisième étant supposées centrales et identiques, qu'il s'agisse de deux atomes de sodium ou de chlore :

$$\begin{bmatrix} A_j & C_j & O & A & C & O \\ C_j & A_j & O & C & A & O \\ O & O & B_j & O & O & B \\ A & C & O & A_k & C_k & O \\ C & A & O & C_k & A_k & O \\ O & O & B & O & O & B_k \end{bmatrix} \qquad (11)$$

$$A_j = \frac{1}{m_1}\left[-\mathcal{E} \quad -8b + 4b\cos\sigma_1 \quad (\cos\sigma_1 + 1)\right]$$

$$A_k = \frac{1}{m_2}\left[\;\text{»} \quad \text{»} \quad \text{»} \right]$$

$$A = \frac{1}{\sqrt{m_1 m_2}}\left[2\left\{\alpha\cos\sigma_1 + \beta(\cos\sigma_1 + 1)\right\} + 8\gamma\cos^2\sigma_1\right]$$

$$B_j = \frac{1}{m_1}\left[-\mathcal{E} \quad -8b + 8b\cos\sigma_1\right]$$

$$B_k = \frac{1}{m_2}\left[\;\text{»} \quad \text{»} \quad \text{»} \right]$$

$$C_j = \frac{1}{m_1}\left[-4b\sin^2\sigma_1\right]$$

$$C_k = \frac{1}{m_2}\left[\;\text{»} \right]$$

$$C = \frac{1}{\sqrt{m_1 m_2}}\left[-8\gamma\sin^2\sigma_1\right]$$

avec : $\pi \vec{S} d = \vec{\sigma}$ de composantes σ_1 , σ_2 , σ_3

d arrêt de maille cubique

$\vec{S}$ vecteur d'onde

α , β , b, γ sont les constantes de force interatomique

$\varepsilon = 2 (\alpha + 2 \beta + 4 \gamma)$

Les constantes de force interatomique sont déterminées à partir des équations :

$$d C_{11} = 2 (\alpha + 4 b + 4 \gamma)$$

$$d C_{44} = 2 (\beta + 2 b + 4 \gamma) \qquad (13)$$

$$d C_{12} = 2 (-\beta + 2 b + 4 \gamma)$$

et $$\omega_o^2 = 2 \frac{m_1 + m_2}{m_1 m_2} (\alpha + 2 \beta + 4 \gamma)$$

où ω_o est la pulsation d'absorption principale infra rouge. C_{11}, C_{12} et C_{44} sont les coefficients d'élasticité. m_1 et m_2 représentent respectivement la masse d'un atome de magnésium et celle d'un atome d'oxygène.

A partir de l'équation (5) et de la matrice (11), on peut calculer les fréquences des ondes élastiques et les rapports d'amplitude des vecteurs propres. Les équations sont les suivantes :

$$\text{i)} \quad (A_j + C_j + \omega^2) (A_k + C_k + \omega^2) - (A + C)^2 = 0$$

pour les fréquences des oscillations acoustiques et optiques longitudinales.

Le rapport des vecteurs propres correspondant est donné par :

$$\frac{\zeta^j}{\zeta^k} = \frac{A + C}{A_j + C_j + \omega^2} = - \frac{A_k + C_k + \omega^2}{A + C}$$

ii) $(A_j - C_j + \omega^2)(A_k - C_k + \omega^2) - (A-C)^2 = 0$

donne les fréquences des oscillations acoustiques et optiques transversales parallèles à l'axe binaire $[\bar{1}10]$.

Le rapport des vecteurs propres correspondant vaut :

$$\frac{\zeta^j}{\zeta^k} = - \frac{A - C}{A_j - C_j + \omega^2} = - \frac{A_k - C_k + \omega^2}{A - C}$$

iii) $(B_j + \omega^2)(B_k + \omega^2) - B^2 = 0$

donne les fréquences des oscillations acoustiques et optiques transversales parallèles à l'axe quaternaire $[001]$.

Le rapport des vecteurs propres correspondant :

$$\frac{\zeta^j}{\zeta^k} = - \frac{B}{B_j + \omega^2} = - \frac{B_k + \omega^2}{B}$$

Données numériques

Nous avons calculé les valeurs des constantes de forces interatomiques, α , β , b et γ , à partir des valeurs expérimentales des trois coefficients d'élasticité mesurés par BHAGAVANTAM (13) et de la pulsation d'absorption principale infra rouge mesurée par WILLMOTT (20). Ces valeurs sont :

$$C_{11} = 2,86 \times 10^{12} \text{ dyne/cm}^2$$

$$C_{12} = 0,87 \times 10^{12} \quad "$$

$$C_{44} = 1,46 \times 10^{12} \quad "$$

et $\omega_o = 10,76 \times 10^{13}$/sec (absorption principale infra rouge).

En prenant pour l'arête de la maille cubique de MgO la valeur d = 4,203 A, nous avons déterminé les valeurs suivantes pour les constantes de forces interatomiques :

$$\alpha = 4,5792 \times 10^4 \text{ dyne/cm}$$

$$\beta = 0,6199 \times " \quad "$$

$$b = 0,5086 \times " \quad "$$

$$\gamma = 0,8664 \times " \quad "$$

A partir de ces valeurs des constantes et à l'aide des équations de la section précédente, nous avons calculé les fréquences des oscillations élastiques et les rapports de leurs amplitudes pour les vecteurs d'onde suivant la direction [110].

Pouvoir diffusant du premier ordre

L'expression du pouvoir diffusant du premier ordre pour MgO est différente de celle du silicium. En effet pour le premier, les oscillations atomiques sont linéaires tandis que pour le deuxième elles sont elliptiques. Cette expression pour MgO, où la maille comprend deux atomes est (19) :

$$P_1 = \frac{|\vec{X}|^2}{(z_1+z_2)(m_1+m_2)} \sum_{\alpha=1}^{6} \frac{E_\alpha}{V_\alpha^2} |\Phi_\alpha|^2$$

$\vec{X}$: vecteur de diffusion

$z_1 + z_2$: nombre total d'électrons de la maille élémentaire

$m_1 + m_2$: masse du motif cristallin

E_α : Energie de l'onde de fréquence ν_α pilotée par le vecteur d'onde $\vec{S}$

(il y a 6 telles ondes, 3 optiques et 3 acoustiques)

$$\Phi_\alpha = f_1 H_1 C_{1\alpha} \cos(\vec{X}, \vec{a}_{1\alpha}) + f_2 H_2 C_{2\alpha} \cos(\vec{X}, \vec{a}_{2\alpha}) \cos \frac{2\pi(M_1+M_2+M_3)}{2}$$

f_1, f_2 : facteurs de structures atomiques

H_1, H_2 facteurs de Debye-Waller

$\vec{a}_{1\alpha}$, $\vec{a}_{2\alpha}$: vecteurs amplitudes des oscillations prises par les atomes pour l'onde

M_1, M_2, M_3 : indice du noeud M du réseau réciproque dont la première zone contient X, le pôle de diffusion.

$C_{1\alpha}$, $C_{2\alpha}$: coefficients d'amplitude définis par

$$\frac{|\vec{a}_{1\alpha}|}{C_{1\alpha}} = \frac{|\vec{a}_{2\alpha}|}{C_{2\alpha}}$$

et $m_1 C_{1\alpha}^2 + m_2 C_{2\alpha}^2 = m_1 + m_2$

($a_{1\alpha}$ et $a_{2\alpha}$ sont comptés algébriquement, les vibrations atomiques dans notre cas, rectilignes et parallèles).

Puisque Φ_α n'intervient dans l'expression de P_1 que par son carré, on peut prendre :

$$C_{1\alpha} = r \sqrt{\frac{m_1 + m_2}{m_1 r^2 + m_2}}$$

où $$\frac{C_{1\alpha}}{C_{2\alpha}} = \frac{|\vec{a}_{1\alpha}|}{|\vec{a}_{2\alpha}|} = r$$

$$C_{2\alpha} = \sqrt{\frac{m_1 + m_2}{m_1 r^2 + m_2}}$$

Les indices M_1, M_2, M_3 des noeuds du réseau réciproque de MgO sont soit tous pairs, soit tous impairs. On voit que si le pôle de diffusion x se trouve dans une première zone centrée sur un noeud M d'indices pairs,

$$\cos 2\pi \frac{M_1 + M_2 + M_3}{2} = 1$$

C'est le cas dans nos mesures où le pôle de diffusion se déplace selon la direction $[110]$ du réseau réciproque.

Pour nos mesures dans la direction $[110]$, la diffusion du premier ordre est uniquement dûe aux deux ondes optiques et acoustiques longitudinales pilotées par le vecteur d'onde $\vec{MX}$, M étant le noeud situé sur l'axe où X se déplace et dont la zone contient X. Les oscillations transversales sont perpendiculaires au vecteur de diffusion et ne contribuent pas à la diffusion.

Les valeurs des pouvoirs diffusants du premier ordre, calculées par cette formule sont données dans la figure 10 et marquées P_1. Comme dans le cas du silicium, pour MgO, nous avons aussi utilisé les facteurs de structure atomique et les facteurs de Debye-Waller des Tables Internationales.

Résultats expérimentaux

Nous avons mesuré les pouvoirs diffusants globaux moyens. $P_{GM'}$ pour les vecteurs de diffusion suivant la direction [110] par transmission. Les échantillons étaient des plaquettes de 1,2 mm d'épaisseur. La formule qui a permis de calculer le pouvoir diffusant global moyen du silicium, de la silice vitreuse et du quartz donne aussi le pouvoir diffusant de MgO ; la méthode expérimentale étant la même. Les résultats de ces mesures sont donnés dans la figure 10.

On remarque figure 10, que pour la valeur de $\sin \theta/\lambda = 0,25$ il y a un minimum de pouvoir diffusant par effet Compton. Pour cette valeur de $\sin \theta/\lambda$, l'énergie cédée par les photons incidents aux électrons est voisine de l'énergie d'émission de raie -L de magnésium (cf. fig. 8).

4) Remarques sur les résultats des études de la diffusion Compton faites par d'autres auteurs

L'existence d'une telle anomalie dans la diffusion Compton, avec correspondance entre le transfert d'énergie des photons -X aux électrons Compton et l'énergie d'émission des raies caractéristiques de l'atome est aussi observable de façon plus ou moins marquée dans les travaux d'autres auteurs : CURIEN et DEROCHE (21) sur Al, WALKER (5) sur Al, MERIEL (19) sur NaCl, LAVAL (4) sur KCl, CRIBIER (6) sur CaF_2 et CHIPMAN et JENNINGS (22) sur Ne et Kr.

Dans les mesures de CHIPMAN et JENNINGS, en particulier, on peut noter une certaine anomalie par les valeurs correspondant à l'énergie d'émission L dans le cas du néon et à celle de l'émission M dans le cas du Krypton.

DASGUPTA (23) par l'analyse spectrographique de la diffusion Compton, a cherché à mettre en évidence l'existence de transitions Smekal-Raman dans le silicium. Il s'agit d'un processus au cours duquel l'électron Compton au lieu d'être éjecté hors de l'atome, passe dans un autre état lié. DASGUPTA a enregistré photographiquement le spectre de diffusion Compton avec un temps de pose de 150 heures. Sur la photographie il signale la présence qu'il appela lignes Stokes et anti Stokes, correspondant aux transitions Smekal-Raman.

Ces résultats ont été contestés, très récemment par WEISS (29). Tout récemment COOPER et LEAKE (25) ont fait l'analyse spectrale de la diffusion incohérente par le graphite. Ils ont constaté l'existence d'extremums secondaires quand le transfert d'énergie entre photon et électron en cours de la diffusion est égal à l'énergie des arêtes d'absorption (absorption edge) des électrons K. Leurs constatations confirment en principe l'existence de l'effet que nous avons mis en évidence dans notre étude.

CONCLUSION

Comme nous l'avons rappelé dans l'introduction, toutes les mesures de la diffusion Compton ont prouvé que les approximations faites dans les calculs de JAMES et BRINDLEY, dans lesquels on néglige les termes d'échanges étaient peu satisfaisants. Les résultats des calculs de FREEMAN qui tiennent compte des termes d'échanges et utilisent les fonctions d'onde de la théorie de HARTREE et FOCK sont, par contre, généralement en bon accord avec les résultats des expériences. Mais cet accord n'est pas parfait pour toutes les valeurs de $\sin \theta/\lambda$. Nos mesures de la diffusion Compton par le silicium ont mis en évidence une anomalie de l'effet Compton. Cette même anomalie se retrouve pour MgO. Nous avons été conduits à proposer une interprétation au moins qualitative de cette anomalie. Des mesures sur la silice vitreuse et sur le quartz ont confirmé, d'ailleurs, le caractère atomique et non cristallin de cette anomalie qui est liée aux transitions électroniques de l'atome.

BIBLIOGRAPHIE

1 - A.J. FREEMAN, Acta cryst. 12, 1959, p. 929.

2 - A.J. FREEMAN, Acta cryst. 12, 1959, p. 276.

3 - A.J. FREEMAN, Acta. cryst. 12, 1960, p. 190.

4 - J. LAVAL, C.R. Acad. Sci. Paris, 215, 1942, p. 359.

5 - C.B. WALKER, Phys. Rev. 103, 1956, p. 558.

6 - D. CRIBIER, Rev. Mod. Phys. 30, 1958, p. 228.

7 - P. OLMER, Bull. Soc. Fr. Miner. 62, 1948, p. 144.

8 - H. CURIEN, Ibid. 75, 1952, p. 197.

9 - DENIS TAYLOR, The measurement of Radio Isotope, Methuen et Co. Londres.

10 - J. LAVAL , Bull. Soc. Fr. Minér. 62, 1939, p. 137.

11 - M. BORN, Dynamik der Kristalgitter, 1915, Leipzig; Atomtheorie das Gesten Zustandes, 1923.

12 - H. SMITH, Trans. Roy. Sc. 241 A, 1948, p. 105.

13 - S. BHAGAVANTAM, Proc. Indian, Acad. Sc., A 41, 1955, p. 72

14 - B.N. BROCKHOUSE, Phys. Rev. Letters, 2, (1959), p. 256.

15 - J. LAVAL, J. Phys. Rad. 15, 1954, p. 545 et 657.

16 - P. NOZIERES et D. PINES, Phys. Rev. 113, 1959, p. 1254.

17 - J. CORBEAU, Thèse, Paris 1963.

18 - B.E. WARREN, Chem. Rev. 26, 1940, p. 237.

19 - P. MERIEL, Thèse, Paris, 1955.

20 - J.C. WILMOTT, Proc. Phys. Soc., A 63, 1950, p. 389.

21 - H. CURIEN et C. DEROCHE, Bull. Soc. Fr. Miner. Crist. 7, 1956, p. 102.

22 - C.R. CHIPMAN et L.D. JENNINGS, Phys. Rev. 132, 1963, p. 728.

23 - K. DASGUPTA, Phys. Rev. Letters, 13, 1964, p. 338.

24 - R.L. BANERJEE, C.R. Acad. Sci. Paris, 258, 1944, p. 5845.

25 - M. COOPER et J.A. LEAKE, Phil. Mag. 13, n° 123, 1966, p. 603.

LEGENDES DES FIGURES

Fig. 1 - Schéma général de l'appareil

Fig. 2 - Trajet du faisceau à travers le cristal dans les conditions expérimentales.

Fig. 3 - P_{GM} : Pouvoir diffusant global mesuré.

P_1 : Pouvoir diffusant thermique (premier ordre) calculé à partir de la formule (8).

P_c : Représente la courbe tracée avec les valeurs du pouvoir diffusant par effet Compton, calculées à partir des données de FREEMAN. Les cercles représentent les valeurs expérimentales obtenues par différence entre P_{GM} et P_1.

Fig. 4 - Positions des domaines de divergence dans le réseau réciproque dans les conditions expérimentales.

Fig. 5 - Courbes de dispersion des ondes dont le vecteur de propagation est parallèle à [224];(3, 3, 6) correspond à la limite de la zone de Brillouin.

Fig. 6 - Figure schématique du cryostat.

Fig. 7 - 1) P_c représente la courbe tracée avec les valeurs du pouvoir diffusant par effet Compton calculé à partir des données de FREEMAN.

2) P_{GM} représente la courbe tracée avec les valeurs du pouvoir diffusant global moyen mesuré à 77°K.

3) Les carrés sont les valeurs de P_c obtenues par différence entre P_{GM} et P_1 à 77°K.

4) P_1 valeurs du pouvoir diffusant thermique (premier ordre) calculé aux températures de 77°K et 4°K.

Fig. 8 - Courbe donnant les valeurs de $\sin \theta/\lambda$ correspondant aux conditions de diffusion dans lesquelles l'énergie cédée par les photons incidents aux électrons Compton est égale à l'énergie de raie L (en angstrom) des différents éléments.

Fig. 9 - P_{GM} : Pouvoir diffusant global moyen mesuré par la silice vitreuse et pour le quartz.

P_c : Pouvoir diffusant par effet Compton calculé à partir des données de FREEMAN.

Fig. 10 - P_{GM} : Pouvoir diffusant global moyen mesuré.

P_1 : Pouvoir diffusant de premier ordre, calculé.

P_c : Pouvoir diffusant par effet Compton calculé d'après les données de FREEMAN. Les cercles représentent les valeurs expérimentales de P_c.

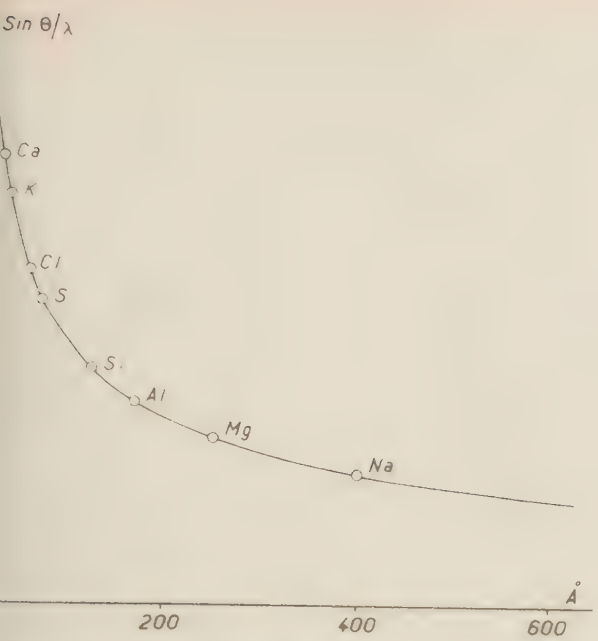

fig.8

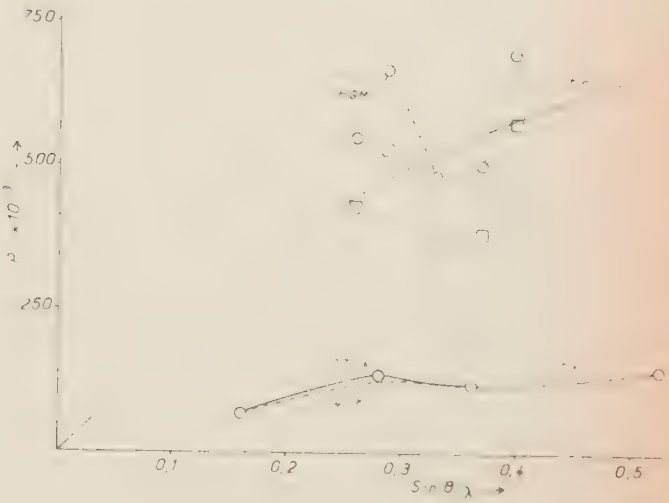

fig.7

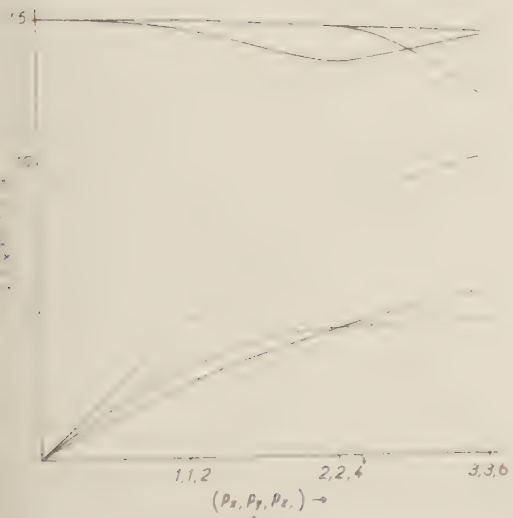

fig.5

fig.1

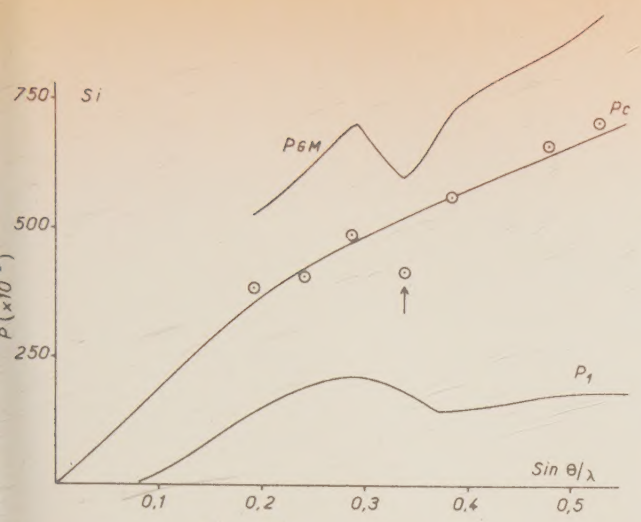

fig.3

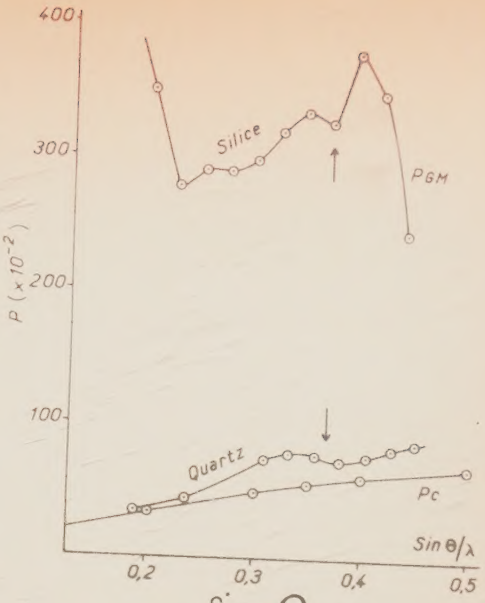

fig.9

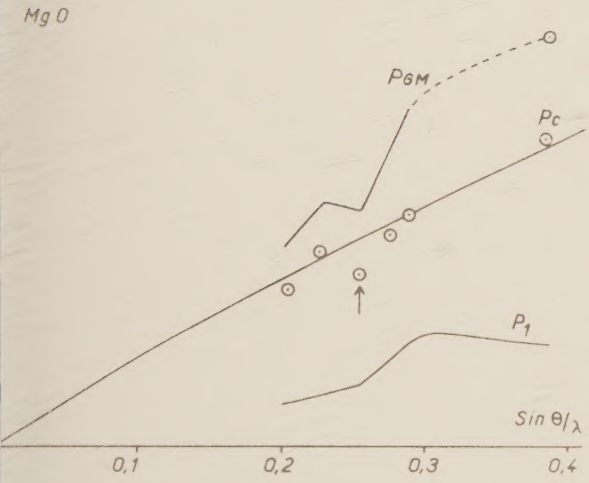

fig.10

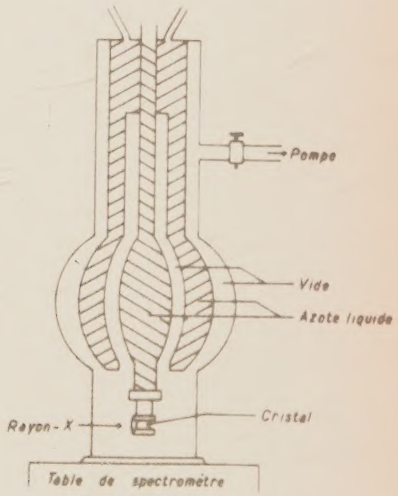

fig.6

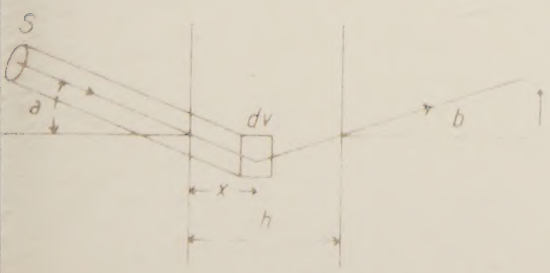

fig.2

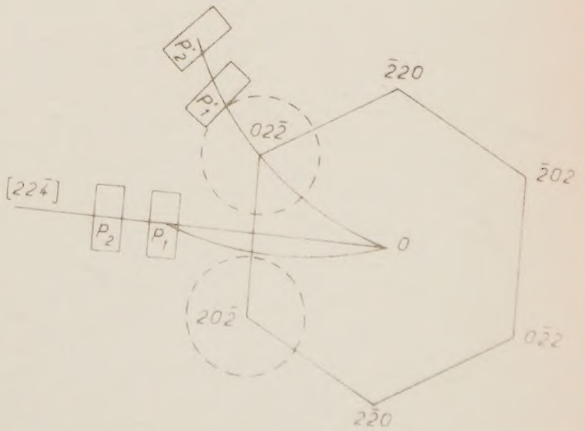

fig. 4